

Министерство образования и науки Российской Федерации  
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ  
ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ  
«САРАТОВСКИЙ НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ  
ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ ИМЕНИ Н.Г. ЧЕРНЫШЕВСКОГО»

Базовая кафедра компьютерной  
физики и метаматериалов  
в Саратовском филиале  
Института радиотехники и электроники  
им. В.А. Котельникова РАН

**Нелинейный оптический отклик и кинетика фотоиндуцированных  
носителей заряда в образце стеклообразного сульфида мышьяка**

АВТОРЕФЕРАТ МАГИСТЕРСКОЙ РАБОТЫ

Студентки 2 курса 254 группы  
направления **03.04.02** «Физика»  
физического факультета  
Федюкиной Нины Анатольевны

Научный руководитель

Профессор, д. ф.- м. н. \_\_\_\_\_ Е. А. Романова

Зав. кафедрой

Профессор, д. ф.- м. н. \_\_\_\_\_ В. М. Аникин

Саратов 2016

## ВВЕДЕНИЕ

### Актуальность темы

Быстрое развитие в конце XX века оптики сверхкоротких импульсов, волоконной и интегральной оптики привело к созданию новых оптических устройств передачи, обработки и хранения информации. В свою очередь, это послужило основанием для создания и экспериментальных исследований новых нелинейных оптических материалов с заданными свойствами. Одним из таких материалов стали халькогенидные стекла. Данные стёкла имеют широкий диапазон прозрачности в инфракрасной области спектра, большие значения линейного показателя преломления, переменность состава, высокая химическая стабильность – эти свойства определяют растущий интерес к исследованию и применению халькогенидных стекол.

Исследование особенностей нелинейного отклика и кинетики носителей заряда в образцах халькогенидных стекол важны для развития технологии модификации оптических стекол лазерными импульсами. С использованием этой технологии можно создавать волноводные структуры в объеме стекла, что является альтернативой дорогостоящим и многоступенчатым интегрально-оптическим технологиям.

**Целью** данной выпускной квалификационной работы магистра является определение особенностей временной динамики нелинейного оптического отклика и кинетики фотоиндуцированных носителей заряда в образце халькогенидного стекла состава  $As_2S_3$  на основании обработки результатов измерений этого отклика интерферометрическим методом "накачка-зондирование".

В соответствии с поставленной целью решались следующие **задачи**:

- Описать особенности нелинейного оптического отклика в образце халькогенидного стекла состава  $As_2S_3$  по результатам измерений интерферометрическим методом «накачка-зондирование»

- Определить значения нелинейных оптических коэффициентов для образца стекла состава  $As_2S_3$  на длине волны лазерного излучения 0.79 мкм.
- Охарактеризовать фотоиндуцированные процессы в халькогенидном стекле и провести исследование кинетики носителей заряда для образца стекла состава  $As_2S_3$  при фотовозбуждении фемтосекундными лазерными импульсами
- Построить компьютерную модель кинетики фотоиндуцированных носителей заряда для образца стекла состава  $As_2S_3$
- Сравнить расчетные и экспериментальные данные и определить время рекомбинации носителей заряда, вероятности образования связанных состояний в запрещенной зоне, используемых в эксперименте.

### **Структура работы**

Данная работа состоит из введения, пяти глав, выводов, библиографического списка и приложения. Глава 1: Нелинейные свойства оптических стёкол. Глава 2: Халькогенидные стёкла, их физико- химические свойства и применение. Глава 3: Исследование нелинейного оптического отклика халькогенидных стёкол. Глава 4: Исследование нелинейных оптических коэффициентов преломления и поглощения в образце халькогенидного стёкла. Глава 5: Исследование кинетики фотоиндуцированных носителей заряда в образцах халькогенидных стёкол.

### **Научная новизна**

- Впервые выявлены особенности временной динамики нелинейного оптического отклика для халькогенидного стекла состава  $As_2S_3$  на основании обработки результатов измерений методом "накачка-зондирование".

- Установлено, что время перехода электрона в связанные состояния зависит от энергии импульса накачки.
- Впервые были выявлены особенности кинетики фотоиндуцированных носителей заряда для образца стекла  $As_2S_3$ .
- Установлено, что плотность связанных состояний (экситонов) в запрещенной зоне растет со временем и достигает постоянного значения, величина которого зависит от энергии лазерного импульса  $E$ , времени рекомбинации дырок  $\tau$  и вероятности захвата свободных электронов  $\sigma_c$ .
- Установлено, что изменения показателя преломления и фазы происходит сильнее всего вблизи поверхности образца на толщине в менее 100 мкм.

#### **Положения, выносимые на защиту:**

Исследуя особенной временной динамики нелинейного отклика в стекле состава  $As_2S_3$  было выявлено, что переход электрона в связанные состояния зависит от энергии импульса накачки.

Плотность связанных состояний в запрещенной зоне зависит от энергии импульса накачки, от вероятности захвата свободных электронов  $\sigma_c$  и времени рекомбинации дырок  $\tau$ . При увеличении  $\tau$  происходит рост максимального значения как свободных дырок, так и электронов, а их переход с связанные состояния происходит медленнее. Однако рост  $\tau$  никак не влияет на максимальное число связанных носителей заряда. При увеличении  $\sigma_c$  уменьшается максимальная плотность свободных электронов, а процесс их перехода в связанные состояния внутри запрещенной зоны происходит немного быстрее. Однако изменение  $\sigma_c$  никак не влияет на кинетику дырок.

Все процессы в халькогенидном стекла состава  $As_2S_3$  происходят вблизи поверхности образца стекла.

## СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

**Во Введении** обоснована актуальность темы, сформулированы цель и задачи выпускной квалификационной работы магистра.

**В Главе 1** обсуждаются нелинейные свойства оптических стёкол, свойства халькогенидных стёкол третьего порядка, а также кинетика фотоиндуцированных носителей заряда в диэлектриках.

Для халькогенидных стёкол свойственны эффекты самоиндуцированной рефракции, которая заключается в изменении показателя преломления под действием лазерного излучения, а также эффект многофотонного поглощения перехода электрона из валентной зоны в зону проводимости путем поглощения нескольких фотонов лазерного излучения[1].

**В Главе 2** представлено описание исследуемых образцов халькогенидных стёкол. Здесь описываются их оптические свойства и области применения данных стёкол.

Халькогенидные стёкла отличаются от оптических тем, что имеют наибольшую нелинейную поляризацию третьего порядка [2], значения керровской постоянной на два- три порядка больше, чем в плавном кварце, а нелинейный отклик является очень быстрым ( порядка фемтосекунд). Благодаря своим уникальным свойствам, халькогенидные стёкла нашли широкое применение в устройствах ИК-оптики, сенсорных технологиях [3], в оптоэлектронике и т.д.

**В Главе 3 в п.3.1** представлено описание трехимпульсного интерферометрического метода "накачка-зондирование"[4]. Данный метод используется в данной работе для исследования временной динамики нелинейного оптического отклика с фемтосекундным временным разрешением, основан на измерении разности фаз двух пробных лазерных импульсов, которая пропорциональна изменению показателя преломления, наведенному в образце импульсом накачки[5]. Также в данной главе **в п.3.2** описывается экспериментальная установка, которая находится в

Техническом Университете, в г.Палезо, во Франции (Рис.1). В качестве источника излучения использовался титан-сапфировый лазер, генерирующий импульсы длительностью 50 фс с частотой повторения 20 Гц на длине волны 790 нм.

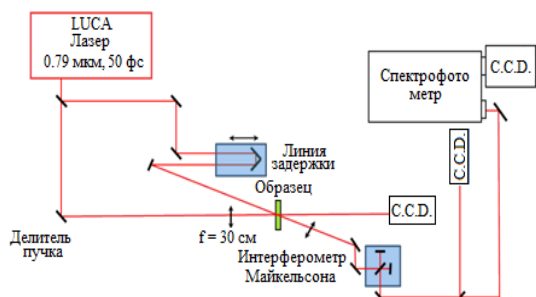


Рис.1. Оптическая схема для измерений трехимпульсным интерферометрическим методом «накачка-зондирование»

В п.3.3 проводилась обработка результатов измерений оптического нелинейного отклика в образцах халькогенидного стекла состава  $As_2S_3$  (сульфид мышьяка) (Рис.2).

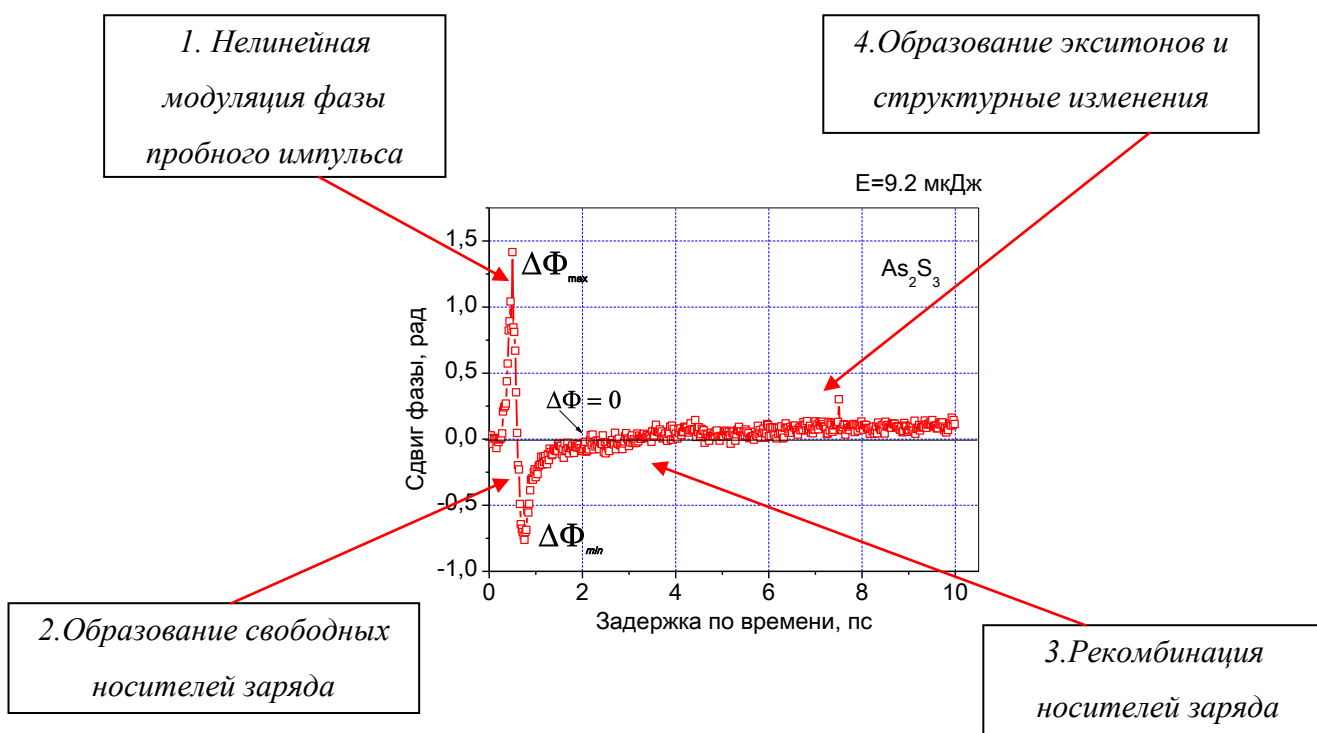
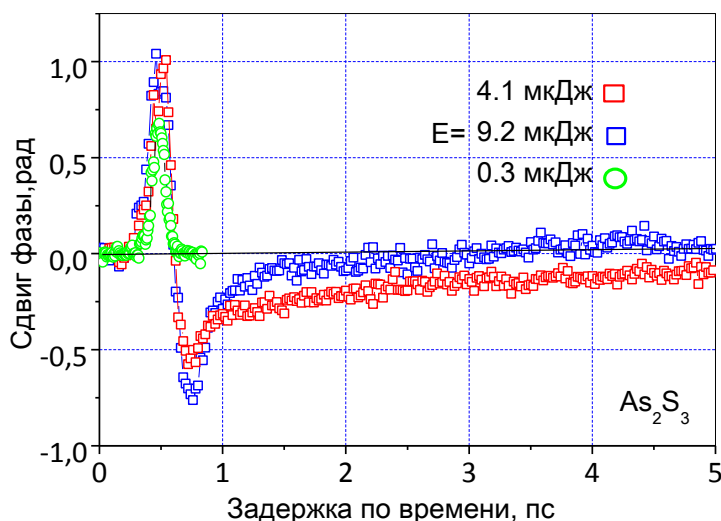


Рис. 2. Зависимость сдвига фазы от временной задержки второго пробного импульса для образца стекла состава  $As_2S_3$  при  $E= 9.2$  мкДж

Данная зависимость была разделена на 4 области, в которых происходили: нелинейная модуляция фазы пробного импульса, интенсивное

образование свободных электронов, рекомбинация носителей заряда, а также структурные изменения стекла.

**В п.3.4** были выявлены особенности временной динамики нелинейного оптического отклика для образца стекла  $As_2S_3$  при различной энергии импульса накачки (Рис.3).



Из временной динамики нелинейного отклика был сделан вывод о том, что время перехода электронов связанные состояния зависит от энергии импульса накачки.

**В Главе 4** производилось измерение нелинейных оптических коэффициентов преломления и поглощения в образцах халькогенидных стекол. **В п.4.1** описывается методика определения коэффициента двухфотонного поглощения  $\beta_2$  и керровской постоянной  $n_2$ .

$$\frac{\partial I_1}{\partial z} = -(\alpha + \beta_2 I_1) I_1 \quad (1a)$$

$$\frac{\partial \varphi_1}{\partial z} = k n_2 I_1 \quad (1б)$$

$$\frac{\partial I_2}{\partial z} = -p \cdot \beta_2 I_1 I_2 \quad (1в)$$

$$\frac{\partial \varphi_2}{\partial z} = p \cdot k n_2 I_1 \quad (1г)$$

Из системы дифференциальных уравнений (1), путем некоторых преобразований, были выведены формулы для  $\beta_2$  и  $n_2$ .

$$\beta_2 = \frac{2}{p \cdot I_1(0) L^{(\alpha)} \sqrt{1 + (L/L_d)^2}} (1 + (1 - A)^{-1/2}) \quad (2)$$

$$n_2 = \Delta\varphi(L) / \left( p \cdot k \int_0^L I_1(z) dz \right) \quad (3)$$

В п.4.2 производится расчет данных коэффициентов.

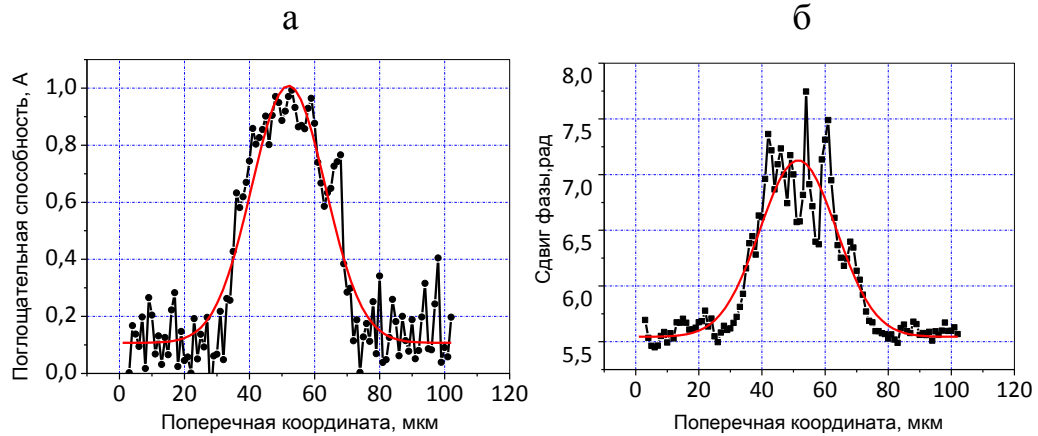


Рис.4. Поперечные профили поглотательной способности(а) и сдвига фазы(б) для стекла  $As_2S_3$  при  $E=0.3$  мкДж

Из Рис.4, используя значения сдвига фазы и поглотательной способности в пиках гауссовых кривых (красные линии), подставив данные значения в уравнения (2) и (3) были получены значения нелинейных оптических коэффициентов для стекла состава  $As_2S_3$ :  $n_2 = 8 \cdot 10^{-15}$  см<sup>2</sup>/Вт и  $\beta_2 = 2$  см/ГВт.

В Главе 5 проведено исследование кинетики фотоиндуцированных носителей заряда в образцах халькогенидных стекол. В п.5.1, используя модель кинетики носителей заряда в виде 4-х уравнений, предложенная в работе [5], была определена кинетика фотоиндуцированных носителей заряда на передней поверхности образца в т.  $z=0$  для образца стекла  $As_2S_3$  (Рис.5).

$$dN_{fh} / dt = \sigma_2 I^2 - N_{fh} / \tau \quad (4a)$$

$$dN_{th} / dt = dN_{fh} / \tau \quad (4б)$$

$$dN_{tr} / dt = \sigma_c \cdot v \cdot N_e (N_{th} - N_{tr}) \quad (4в)$$

$$dN_e / dt = \sigma_2 I^2 - \sigma_c \cdot v \cdot N_e (N_{th} - N_{tr}) \quad (4г)$$



Все плотности носителей заряда были нормированы на критическую плотность плазмы  $N_c = (\omega^2 \epsilon_0 m^*) / e^2$ , а на рисунке 5 представлено решение системы уравнений (4).

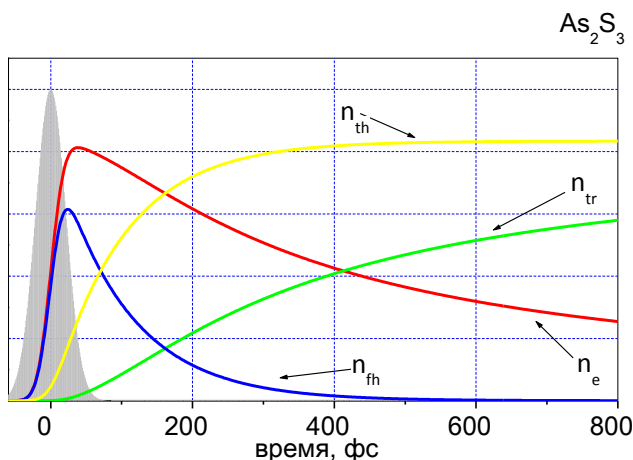


Рис.5. Кинетика фотоиндуцированных носителей заряда на передней поверхности образца ( $z=0$ ) трисульфида мышьяка

Из Рис.5 можно судить о кинетике носителей заряда в халькогенидных стеклах. При поглощении лазерного излучения возникают свободные носители зарядов: электроны и дырки. Потом дырки переходят в связанные состояния, а электроны продолжают находиться в зоне проводимости, перемещаясь в объеме образца, после чего они захватываются дырками, т.е. происходит рекомбинация с переходом в связанное состояние. **В п. 5.2** исследовалась кинетика носителей заряда при различном времени рекомбинации фотоиндуцированных дырок. Анализируя кинетику носителей заряда, увеличивая время рекомбинации дырок  $\tau$ , было выявлено, что увеличение  $\tau$  влияет на максимальное число свободных носителей заряда и на их переход в связанные состояния, но не влияет на максимальное число связанных носителей заряда. **В п.5.3** изменялась уже вероятность захвата электронов дырками  $\sigma_c$ . Выяснилось, что изменения данного параметра влияет только на кинетику электронов, а кинетика дырок не зависит от  $\sigma_c$ . **В п.5.4** представлен профиль интенсивности импульса накачки при его распространении в образце стекла. Было выявлено, что она уменьшается по мере распространения импульса накачки вследствие двухфотонного поглощения. Также в данном пункте представлена кинетика носителей заряда в объеме образца. Анализируя графики профилей плотностей

носителей заряда, было установлено, что все процессы происходят вблизи поверхности образца стекла на толщине 20-30 мкм. В п.5.5 и 5.6 проведен анализ изменения показателя преломления и сдвига фазы. Сильнее всего изменения происходят также вблизи поверхности образца стекла на толщине менее 100 мкм. В п.5.7 производилось сравнение расчетных и экспериментальных данных. Проанализировано, как влияет изменение параметров  $\tau_r$  и  $\sigma_c$  на фазу.

Хорошее согласование расчетных и экспериментальных данных было получено при следующих значениях параметров для различной энергии импульса накачки. Для  $E=4.1$  мкДж: при значениях параметров  $\tau_r=85$  фс и при  $\sigma_c=15 \cdot 10^{-14}$  см<sup>2</sup> была получена временная зависимость сдвига фазы, хорошо согласующаяся с результатами эксперимента(Рис.6а). Аналогично, для  $E=9.2$  мкДж: при значениях параметров  $\tau_r=85$  фс и при  $\sigma_c=40 \cdot 10^{-14}$  см<sup>2</sup> была получена временная зависимость сдвига фазы, также хорошо согласующаяся с результатами эксперимента(Рис.6б).

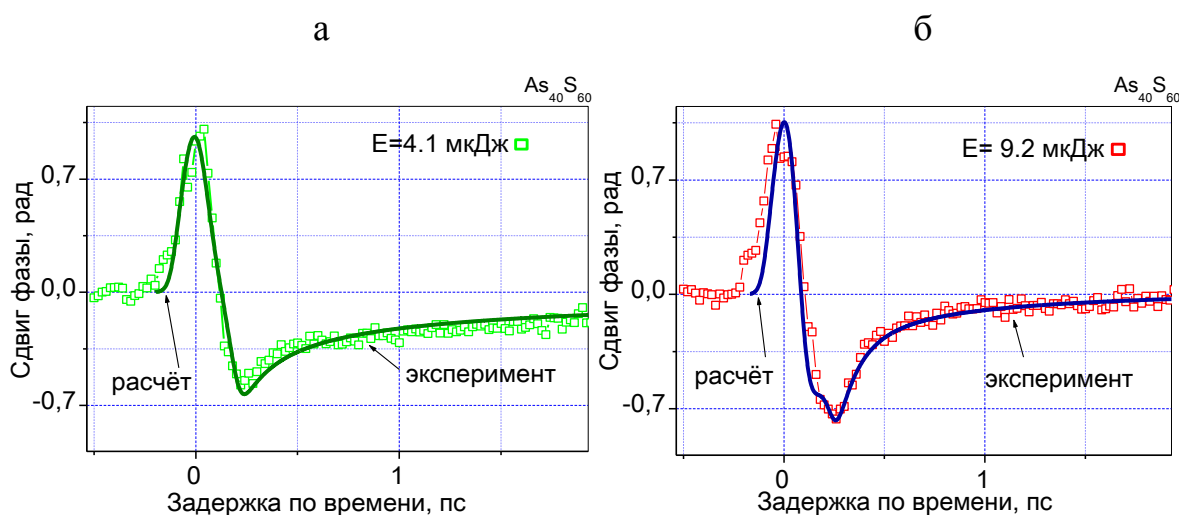


Рис.6.Сдвиг фазы в зависимости от задержки по времени, полученный, полученный в эксперименте и в расчете при энергии импульса накачки:(а)- 4.1 мкДж и (б)-  $E= 9.2$  мкДж

## Заключение

В данной работе была проведена обработка результатов измерений нелинейного оптического отклика в образце халькогенидного стекла состава  $As_2S_3$  с помощью трехимпульсного интерферометрического метода "накачка-зондирование" при падении на образец стекла сфокусированного лазерного пучка. Для исследования кинетики электронов использовалась модель плоской световой волны в связи с тем, что для фокусировки пучка использовалась длиннофокусная линза.

В результате воздействия на среду импульса накачки происходит изменение фазы и показателя преломления пробного импульса. Стационарное изменение показателя преломления при облучении лазерным импульсом происходит градиентно вблизи поверхности образца на толщине менее 100 мкм и может достигать значений до 0.01.

По результатам измерений сдвига фазы и поглощательной способности были получены значения керровской постоянной и коэффициента двухфотонного поглощения для образца стекла состава  $As_2S_3$  на длине волны 0.79 мкм. На основе анализа графиков для изменения фазы при различных энергиях импульса накачки была построена кинетическая модель для плотности фотоиндуцированных носителей заряда.

Кинетика фотоиндуцированных носителей заряда состоит из двух этапов: вначале происходит самозахват дырок, а затем захват свободных электронов и формирование связанных экситонных состояний в запрещенной зоне. Плотность связанных состояний (экситонов) в запрещенной зоне растет со временем и достигает постоянного значения, величина которого зависит от энергии лазерного импульса, времени рекомбинации дырок и вероятности захвата свободных электронов.

Правильность данной модели подтверждается согласием расчетов с результатами измерений.

## Список литературы

- [1] Ю.С. Кузюткина, Е.А. Романова, А.И. Конюхов "Экспериментальные методы исследования нелинейных свойств оптических стекол". Саратов 2013.
- [2] Zakery A., Elliot S.R. "Optical nonlinearities in chalcogenide glasses and their applications". Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2007.
- [3] Толмачев И.Д., Стронский А.В. "Применение халькогенидных стеклообразных полупроводников в сенсорах и сенсорных системах (обзор)". ОПТ. — 2009. — Вып. 44.
- [4] Guizard S., Mao S.S., Quere F., Mao X., Russo R.E., Petite G., Martin P. Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics // Applied Physics A. 2004. V. 79. P. 1695–1709.
- [5] P. Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D'Oliveira, P. Meynadier, and M. Perdrix. "Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals". Phys. Rev. B 55, 5799 – Published 1 March 1997.